

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

PCT/JP00/05838

日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

29.08.00

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application:

1999年 9月21日

REC'D 04 DEC 2000

WIPO PCT

出 願 番 号  
Application Number:

平成11年特許願第266824号

出 願 人  
Applicant(s):

鐘紡株式会社  
信越化学工業株式会社

JP00/05838

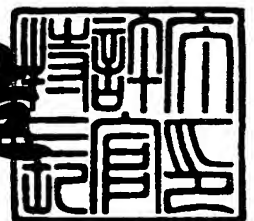
4

PRIORITY  
DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2000年11月17日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2000-3078729

【書類名】 特許願

【整理番号】 P1999-0015

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 A61K 7/00

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県小田原市寿町5丁目3番28号 鐘紡株式会社  
化粧品研究所内

【氏名】 黒田 章裕

【発明者】

【住所又は居所】 群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内

【氏名】 作田 晃司

【特許出願人】

【代表出願人】

【識別番号】 000000952

【氏名又は名称】 鐘紡株式会社

【代表者】 帆足 隆

【電話番号】 03-5446-3575

【特許出願人】

【識別番号】 000002060

【氏名又は名称】 信越化学工業株式会社

【代表者】 金川 千尋

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 010205

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

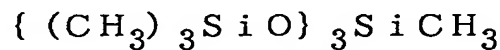
【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 化粧品

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 油溶性樹脂を下記構造式を有する化合物で溶解した溶解液を、化粧品中に配合することを特徴する化粧品。



【請求項 2】 溶解液を、化粧品 100 重量部に対して 0.1～50 重量部配合することを特徴する請求項 1 記載の化粧品。

【請求項 3】 油溶性樹脂がシリコーン系樹脂から選ばれることを特徴とする請求項 1 に記載の化粧品。

【請求項 4】 溶解液中の油溶性樹脂の濃度が 5～60 重量%であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の化粧品。

【請求項 5】 溶解液中の油溶性樹脂の濃度が 30～60 重量%であることを特徴とする請求項 1～3 のいずれか 1 項に記載の化粧品。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、化粧効果の持続性と感触に優れた化粧品に関する。

さらに詳しくは、揮発性に優れる特定構造の分岐状揮発性シリコーンに溶解した油溶性樹脂を配合し、緻密な化粧塗膜が短時間に形成させることで、化粧効果の持続性と感触に優れた化粧品に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来、揮発性シリコーンとして、環状 4 量体ジメチルポリシロキサン（オクタメチルシクロテトラシロキサン、以下 D4 という）と環状 5 量体ジメチルポリシロキサン（デカメチルシクロペンタシロキサン、以下 D5 という）が化粧品に多用されてきた。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、D4は沸点が175℃で使いやすいが、凝固点が17℃にあるため、冬場にD4を含む製品中でD4が結晶化してしまったり、製品が分離するなどの問題があった。また冬場に製品を製造する際には、D4原料を配合する前に、一度加温してD4を溶かす必要があり手間がかかる問題があった。また、D5の凝固点は-40℃で実用性が高いが、沸点が210℃で揮発性が弱く、D4をD5で代替することは官能特性的に問題がある他、肌にD5が長時間残留し、化粧塗膜の強度が弱くなる結果、化粧効果の持続性が低下してしまう問題があった。そのため、実用上はD4とD5を混合して使用し、揮発性と結晶化の防止を両立させている場合が多かった。

#### 【0004】

一方、化粧崩れを防止するために揮発性溶剤に溶解した油溶性樹脂、例えばトリメチルシロキシケイ酸をD5に溶解した溶解液をサンスクリーン剤や化粧下地に配合することが知られている。この場合、油溶性樹脂を配合することによって、配合しない場合と比べてより優れた化粧効果の持続性が得られることが判っている。しかしながら、油溶性樹脂の効果をモデルで試験した場合と、製品を実使用して試験した場合で比較すると、実使用時の効果はモデルで得られる程には得られないのが実態であった。

#### 【0005】

##### 【課題を解決するための手段】

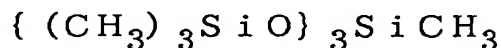
本発明人らは、これらの問題に鑑み、その原因について鋭意検討した結果、D5が肌に残留している割合が多いと、油溶性樹脂の塗膜が半乾きの状態となり、皮脂や汗の影響に対して弱くなってしまうことが判った。そこで、D4のように冬場に固まらず、安全性にも問題がなく、皮膚から脱脂しにくく、かつ揮発性に優れる溶媒を検討した結果、特定の構造を有する分岐状のジメチルポリシロキサンの沸点が190℃とD4に近い値を持ちながら、凝固点は-82.8℃であり、冬場にもD4のように固まることもなく優れていることを見出した。そして、この揮発性溶媒を油溶性樹脂の溶媒として用いたところ、D5を用いた場合と比べて、より短時間に化粧塗膜が完成し、化粧効果の持続性が向上できること、また感触的にも油性感を低減できることを見出した。

## 【0006】

すなわち、第1の本発明は、油溶性樹脂を下記構造式を有する化合物で溶解した溶解液を、化粧品中に配合することを特徴とする化粧品にある。

尚、以下では、本化合物のことを「M3T」と呼ぶ。

## 【0007】



## 【0008】

第2の本発明は、上記溶解液を、化粧品100重量部に対して0.1～50重量部配合することを特徴する上記の化粧品にある。

## 【0009】

第3の本発明は、油溶性樹脂がシリコーン系樹脂から選ばれることを特徴とする上記の化粧品にある。

## 【0010】

第4の本発明は、溶解液中の油溶性樹脂の濃度が5～60重量%であることを特徴とする上記の化粧品にある。

## 【0011】

第5の本発明は、溶解液中の油溶性樹脂の濃度が30～60重量%であることを特徴とする上記の化粧品にある。

## 【0012】

## 【発明の実施の形態】

本発明で用いる油溶性樹脂は、通常化粧品に用いられるものであれば構わないが、単体又は溶媒や分散媒体を除いた常温常圧下での状態がペースト状乃至固体状のものであって、M3Tに溶解する性質を有するものである。好ましい油溶性樹脂の例としては、シリコーン系の樹脂、またはシリコーンまたはシランで変性した樹脂が挙げられる。例えば、 $\text{SiO}_{0.5}$ 、 $\text{SiO}$ 、 $\text{SiO}_{1.5}$ 、 $\text{SiO}_2$ 単位を有する置換又は非置換のシリコーン樹脂である信越化学工業社製のKR-144、KR-266、KR-278、KR-285等、重合度が5000～8000のジメチルシリコーンゴム、トリメチルシロキシケイ酸、シリコーン化プルランである信越化学工業社製のシリル化ポリマーL-MPL等のトリメチルシリル

プルラン等、シリコーンエラストマー、フルオロアルキル変性シリコーン樹脂、アクリル・シリコーングラフト共重合体、ポリオキシアルキレン変性シリコーン樹脂、ポリグリセリル変性シリコーン樹脂、アミノ変性シリコーン樹脂、ジメチルシロキサン・メチルステアロキシシロキサン共重合体等が挙げられる。

## 【0013】

本発明では、油溶性樹脂の溶媒としてM3Tを用いる。M3Tは、古くは1970年前後に旧ソビエト連邦で検討されていた化合物であり、例えばDokl. Akad. Nauk SSSR(1976), 227(3), 607-10頁等の文献に記載があり、物質的には新規化合物ではない。しかしながら、化粧品用途について言えば、M3Tは揮発性シリコーンの一種ではあるが、従来の揮発性シリコーンを含む化粧品関連特許は、いずれも環状体、直鎖体またはフェニル基を誘導したタイプに関するものであり、実施例等でM3Tに言及したものは見られず、M3Tを化粧品に配合する点については新規であると言える。

## 【0014】

M3Tの製造方法としては、次の方法等が挙げられる。

M3Tは、メチルトリクロルシランとトリメチルクロルシランを共加水分解することによって得ることができる。モル比は、メチルトリクロルシラン1モルに対して、少なくとも3モルのトリメチルクロルシランが必要である。

また、ヘキサメチルジシロキサンとメチルトリアルコキシシランを、酸性触媒存在下で加水分解することによっても得ることができる。モル比は、メチルトリアルコキシシラン1モルに対して、少なくとも1.5モルのヘキサメチルジシロキサンが必要である。メチルトリアルコキシシランの具体例としては、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、メチルトリプロポキシシラン、メチルトリブトキシシランを挙げることができる。酸性触媒の具体例としては、硫酸、メタスルホン酸、トリフロロメタスルホン酸の他、イオン交換樹脂を使用することもできる。

## 【0015】

本発明では、油溶性樹脂をM3Tに溶解して用いる。溶解液中の油溶性樹脂の濃度は5～60重量%が好ましく、さらに好ましくは30～60重量%である。



この濃度であれば、油溶性樹脂の化粧料中への配合が容易であり、かつ油溶性樹脂の効果が期待できる。尚、油溶性樹脂の溶解液を製造する際に、M 3 T 以外に界面活性剤等も配合することができる。

## 【 0 0 1 6 】

本発明では、油溶性樹脂をM 3 T に溶解して得られる溶解液を、化粧料 1 0 0 重量部に対して 0. 1 ~ 5 0 重量部配合することが好ましい。この範囲であれば、感触を犠牲にせずに、化粧効果の持続性を向上させることができる。

## 【 0 0 1 7 】

本発明の化粧料では、M 3 T 以外に、通常化粧料に用いられる油剤、粉体（顔料、色素、樹脂）、フッ素化合物、樹脂、界面活性剤、粘剤、防腐剤、香料、紫外線吸収剤（有機系、無機系を含む。UV - A、B のいずれに対応していても構わない）、保湿剤、塩類、溶媒、酸化防止剤、キレート剤、中和剤、p H 調整剤、昆虫忌避剤、生理活性成分等の各種成分を適宜配合することができる。

## 【 0 0 1 8 】

粉体の例としては、赤色 1 0 4 号、赤色 2 0 1 号、黄色 4 号、青色 1 号、黒色 4 0 1 号等の色素、黄色 4 号 A 1 レーキ、黄色 2 0 3 号 B a レーキ等のレーキ色素、ナイロンパウダー、シルクパウダー、ポリウレタンパウダー、ポリテトラフルオロエチレンパウダー、シリコーンエラストマー球状粉体、シリコーンゴムパウダー、ポリメタクリル酸メチルパウダー、セルロースパウダー、ポリエチレンパウダー、ポリプロピレンパウダー等の高分子（これらの中での油溶性樹脂は、M 3 T に溶解せず本発明の目的を達成する範囲内で配合する）、黄酸化鉄、赤色酸化鉄、黒酸化鉄、酸化クロム、カーボンブラック、群青、紺青等の有色顔料、酸化亜鉛、酸化チタン、酸化セリウム等の白色顔料、タルク、マイカ、セリサイト、カオリン、板状硫酸バリウム等の体質顔料、雲母チタン等のパール顔料、硫酸バリウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、珪酸アルミニウム、珪酸マグネシウム等の金属塩、シリカ、アルミナ等の無機粉体、ベントナイト、スメクタイト、窒化ホウ素、微粒子酸化チタン、微粒子酸化亜鉛等が挙げられる。これらの粉体の形状（球状、棒状、針状、板状、不定形状、鱗片状、紡錘状など）大きさに特に制限はない。

【 0 0 1 9 】

これらの粉体は、従来公知の表面処理、例えばフッ素化合物処理、シリコーン処理、シリコーン樹脂処理、ペンダント処理、シランカップリング剤処理、チタンカップリング剤処理、油剤処理、N-アシル化リジン処理、ポリアクリル酸処理、金属石鹸処理、アミノ酸処理、無機化合物処理、プラズマ処理、メカノケミカル処理等によって事前に表面処理されていてもいなくても構わない。

【 0 0 2 0 】

これらの粉末の内、シリコーンエラストマー球状粉体、ポリエチレンパウダー、ポリプロピレンパウダー、ポリテトラフルオロエチレンパウダー、シリコーンゴムパウダー、ポリウレタンパウダー等のエラストマーを用いると、製品の経日安定性や感触が向上することから好ましい。

【 0 0 2 1 】

油剤としては、通常化粧品に用いられる揮発性および不揮発性の油剤および溶剤および樹脂が挙げられ、常温で液体、ペースト、固体であっても構わないが、ハンドリングに優れる液体が好ましい。油剤の例としては、例えばセチルアルコール、イソステアリルアルコール、ラウリルアルコール、ヘキサデシルアルコール、オクチルドデカノール等の高級アルコール、イソステアリン酸、ウンデシレン酸、オレイン酸等の脂肪酸、グリセリン、ソルビトール、エチレングリコール、プロピレングリコール、ポリエチレングリコール等の多価アルコール、ミリスチン酸ミリスチル、ラウリン酸ヘキシル、オレイン酸デシル、ミリスチン酸イソプロピル、ジメチルオクタン酸ヘキシルデシル、モノステアリン酸グリセリン、フタル酸ジエチル、モノステアリン酸エチレングリコール、オキシステアリン酸オクチル等のエステル類、流動パラフィン、ワセリン、スクワラン等の炭化水素、ラノリン、還元ラノリン、カルナバロウ等のロウ、ミンク油、カカオ脂、ヤシ油、パーム核油、ツバキ油、ゴマ油、ヒマシ油、オリーブ油等の油脂、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・コオリゴマー等が挙げられる。

【 0 0 2 2 】

また、別の形態の油剤の例としては、例えばジメチルポリシロキサン、メチルヒドロジェンポリシロキサン、メチルフェニルポリシロキサン、ポリエーテル

変性オルガノポリシロキサン、フルオロアルキル・ポリオキシアルキレン共変性オルガノポリシロキサン、アルキル変性オルガノポリシロキサン、末端変性オルガノポリシロキサン、フッ素変性オルガノポリシロキサン、アモジメチコーン、アミノ変性オルガノポリシロキサン、シリコーンゲル、シリコーンRTVゴム等のシリコーン化合物、パーフルオロポリエーテル、フッ化ピッチ、フルオロカーボン、フルオロアルコール等のフッ素化合物が挙げられる。

#### 【0023】

溶媒としては、精製水、環状シリコーン、エタノール、軽質流動イソパラフィン、低級アルコール、エーテル類、LPG、フルオロカーボン、N-メチルピロリドン、フルオロアルコール、揮発性直鎖状シリコーン、次世代フロン等が挙げられるが、常温常圧下の沸点が205℃以上の溶媒については、その配合量を感触調整を目的とする程度に制限することが好ましい。

#### 【0024】

本発明の化粧料の剤型としては、油中水型乳化物、水中油型乳化物、油性、ゲル状、固形等が挙げられる。本発明の化粧料の形態としては、乳液状、ローション状、ゲル状、クリーム状、スティック状、固体状等が挙げられる。

#### 【0025】

本発明の化粧料としては、例えば乳液、クリーム、ローション、カラミンローション、サンスクリーン剤、サントラン剤、アフターシェーブローション、プレシェーブローション、パック料、クレンジング料、洗顔料、アクネ対策化粧料、エッセンス等の基礎化粧料、ファンデーション、白粉、アイシャドウ、アイライナー、アイブロー、チーク、口紅、ネイルカラー等のメイクアップ化粧料、シャンプー、リンス、コンディショナー、ヘアカラー、ヘアトニック、セット剤、ボディパウダー、デオドラント、脱毛剤、石鹸、ボディシャンプー、入浴剤、ハンドソープ、香水等が挙げられる。

#### 【0026】

##### 【実施例】

以下、実施例及び比較例によって本発明を詳細に説明する。

また、実施例及び比較例で得られた化粧料の各種特性に対する評価方法を以下

に示す。

# 【 0 0 2 7 】

## ( 1 ) 官能特性評価・化粧効果の持続性評価

専門パネラー 1 0 名を用いて、試作品の官能特性を評価した。各官能特性に関して、優れている場合を + 5 点、劣っている場合を 0 点とし、その間を計 4 段階で評価し、全員の点数の合計を以て評価結果とした。従って、点数が高いほど、評価が高いことを示す。また、化粧効果の持続性は、半顔ずつ実施例及び比較例の化粧下地料を使用した上から市販の夏用ファンデーションを使用し、その際の化粧持ちから同様の評価方法により判断した。

# 【 0 0 2 8 】

## 実施例 1

シリコーン系樹脂の一種であるトリメチルシロキシケイ酸を 5 0 重量 % 濃度で M 3 T に溶解した溶解液を用い、表 1 の処方に従って紫外線防御化粧下地料を製した。尚、配合量の単位は重量 % である。

# 【 0 0 2 9 】

( 表 1 )

成 分	配合量
成分 A	
シリコーン処理微粒子酸化チタン	4
M 3 T	1 0
ポリエーテル変性シリコーン	1
成分 B	
シリコーン処理微粒子酸化亜鉛	6
パーフルオロアルキルリン酸エステル処理着色肌色マイカ	0. 5
成分 C	
オルガノポリシロキサン球状粉末	4
ジメチルポリシロキサン	2
フッ素化ジメチコノール	1

M 3 T	1 5
トリメチルシロキシケイ酸溶解液 (5 0 重量%)	6
パラメトキシケイ皮酸オクチル (紫外線吸収剤)	3
パーフルオロポリエーテル	0. 5
成分 D	
エチルアルコール	1 0
精製水	残 量
アロエエキス (保湿剤)	1
ハマメリスエキス (ひきしめ成分)	1
ハイビスカスエキス (肌柔軟化成分)	0. 5

## 【 0 0 3 0 】

成分 A をローラーミルを用いて粉碎しペースト化した。成分 C を素混合し、ミキサーを用いてよく粉碎した。成分 B と成分 C を混合し、よく分散した後、成分 A を加え、さらによく混合した。次いで均一に溶解した成分 D を加え、よく攪拌した後、ステンレスボールと共に容器に充填して製品を得た。

## 【 0 0 3 1 】

## 比較例 1

実施例 1 において全ての M 3 T の代りに D 5 を用いた他は全て実施例 1 と同様にして製品を得た。

## 【 0 0 3 2 】

## 実施例 2

実施例 1 の表 1 の成分 A の M 3 T の代りに D 4 を用いた他は全て実施例 1 と同様にして製品を得た。

## 【 0 0 3 3 】

## 比較例 2

実施例 1 で用いた樹脂溶解液の M 3 T と成分 C の M 3 T の代りに D 5 を用い、成分 A の M 3 T の代りに D 4 を用いた他は全て実施例 1 と同様にして製品を得た。

## 【 0 0 3 4 】

以下の表 2 に実施例及び比較例の評価結果を示す。

【0035】

(表 2)

	化粧効果の持続性	油性感が弱い
実施例 1	4 2	3 9
実施例 2	4 4	4 0
比較例 1	2 9	1 6
比較例 2	3 2	2 2

【0036】

表 2 の試験結果より、本発明の実施例は比較例と比べて化粧効果の持続性に優れ、かつ塗布時、経時での油性感が少ないという結果が得られた。特に化粧効果の持続性については、皮脂によるくずれが少ないことが判った。また、いずれのサンプルも使用後に肌に異常は認められなかった。

【0037】

【発明の効果】

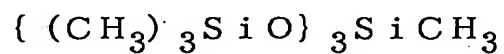
以上のことから、本発明は、 $\{(\text{CH}_3)_3\text{SiO}\}_3\text{SiCH}_3$ の構造を有し、揮発性に優れる特定構造の分岐状揮発性シリコーンに溶解した油溶性樹脂を配合することで、化粧効果の持続性と感触に優れた化粧料が得られることは明らかである。

【書類名】要約書

【要約】

【課題】化粧効果の持続性と感触に優れた化粧料を提供する。

【解決手段】油溶性樹脂を下記構造式を有する化合物で溶解した溶解液を、化粧料中に配合することを特徴する化粧料。



【選択図】なし

認定・付加情報

特許出願の番号	平成11年 特許願 第266824号
受付番号	59900916032
書類名	特許願
担当官	宇留間 久雄 7277
作成日	平成11年11月10日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成11年 9月21日
【特許出願人】	申請人
【識別番号】	000000952
【住所又は居所】	東京都墨田区墨田五丁目17番4号
【氏名又は名称】	鐘紡株式会社
【特許出願人】	
【識別番号】	000002060
【住所又は居所】	東京都千代田区大手町二丁目6番1号
【氏名又は名称】	信越化学工業株式会社



出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000000952]

1. 変更年月日	1990年 8月24日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都墨田区墨田5丁目17番4号
氏 名	鐘紡株式会社

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000002060]

1. 変更年月日

1990年 8月22日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都千代田区大手町二丁目6番1号

氏 名

信越化学工業株式会社